



30 JUIL. 2004

REC'D 15 OCT 2004

WIPO

PCT

# BREVET D'INVENTION

**CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION**

## COPIE OFFICIELLE

Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

Fait à Paris, le 15 JUIL. 2004

Pour le Directeur général de l'Institut  
national de la propriété industrielle  
Le Chef du Département des brevets

Martine PLANCHE

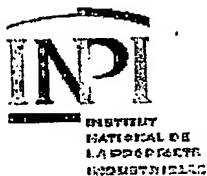
**DOCUMENT DE PRIORITÉ**

PRÉSENTÉ OU TRANSMIS  
CONFORMÉMENT À LA  
RÈGLE 17.1.a) OU b)

INSTITUT  
NATIONAL DE  
LA PROPRIÉTÉ  
INDUSTRIELLE

SIEGE  
26 bis, rue de Saint-Petersbourg  
75800 PARIS cedex 08  
Téléphone : 33 (0)1 53 04 53 04  
Télécopie : 33 (0)1 53 04 45 23  
www.inpi.fr

BEST AVAILABLE COPY



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITÉ

26bis, rue de Saint-Petersbourg  
75800 Paris Cédex 08  
Téléphone: 01 53.04.53.04 Télécopie: 01.42.94.86.54

Code de la propriété intellectuelle-livre VI

REQUÊTE EN DÉLIVRANCE

DATE DE REMISE DES PIÈCES: 29 juillet 2003 - N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL: 0350379 - DÉPARTEMENT DE DÉPÔT: 75 Paris DATE DE DÉPÔT: 29 juillet 2003 -	Jean LEHU BREVATOME 3, rue du Docteur Lancereaux 75008 PARIS France
Vos références pour ce dossier: B14302-3 FG DD2477	

<b>1 NATURE DE LA DEMANDE</b>							
Demande de brevet							
<b>2 TITRE DE L'INVENTION</b>							
	STRUCTURES POREUSES UTILISABLES EN TANT QUE PLAQUES BIPOLAIRES ET PROCÉDES DE PRÉPARATION DE TELLES STRUCTURES POREUSES.						
<b>3 DECLARATION DE PRIORITE OU REQUETE DU BENEFICE DE LA DATE DE DEPOT D'UNE DEMANDE ANTERIEURE FRANCAISE</b>	<table border="1"> <thead> <tr> <th>Pays ou organisation</th> <th>Date</th> <th>N°</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td colspan="3"> </td> </tr> </tbody> </table>	Pays ou organisation	Date	N°			
Pays ou organisation	Date	N°					
<b>4-1 DEMANDEUR</b>							
Nom Rue Code postal et ville Pays Nationalité Forme juridique	COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE 31-33, rue de la Fédération 75752 PARIS 15ème France France Etablissement Public de Caractère Scientifique, technique et Ind						
<b>4-2 DEMANDEUR</b>							
Nom Rue Code postal et ville Pays Nationalité Forme juridique	SNECMA MOTEURS 2, boulevard du Général Martial Valin 75015 PARIS France France Société anonyme						

<b>5A MANDATAIRE</b>				
Nom	LEHU			
Prénom	Jean			
Qualité	Liste spéciale: 422-5 S/002, Pouvoir général: 7068			
Cabinet ou Société	BREVATOME			
Rue	3, rue du Docteur Lancereaux			
Code postal et ville	75008 PARIS			
N° de téléphone	01 53 83 94 00			
N° de télécopie	01 45 63 83 33			
Courrier électronique	brevets.patents@brevalex.com			
<b>6 DOCUMENTS ET FICHIERS JOINTS</b>				
	Fichier électronique	Pages	Détails	
Texte du brevet	textebrevet.pdf	21	D 18, R 2, AB 1	
Dessins	dessins.pdf	1	page 1, figures 6, Abrégé: page 1, Fig.2	
Désignation d'inventeurs				
Pouvoir général				
<b>7 MODE DE PAIEMENT</b>				
Mode de paiement	Prélèvement du compte courant			
Numéro du compte client	024			
<b>8 RAPPORT DE RECHERCHE</b>				
Etablissement immédiat				
<b>9 REDEVANCES JOINTES</b>				
	Devise	Taux	Quantité	Montant à payer
062 Dépôt	EURO	0.00	1.00	0.00
063 Rapport de recherche (R.R.)	EURO	320.00	1.00	320.00
Total à acquitter	EURO			320.00

La loi n°78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.

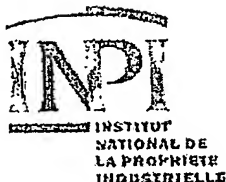
Signé par

Signataire: FR, Brevatome, J.Lehu

Emetteur du certificat: DE, D-Trust GmbH, D-Trust for EPO 2.0

Fonction

Mandataire agréé (Mandataire 1)



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITE

### Réception électronique d'une soumission

Il est certifié par la présente qu'une demande de brevet (ou de certificat d'utilité) a été reçue par le biais du dépôt électronique sécurisé de l'INPI. Après réception, un numéro d'enregistrement et une date de réception ont été attribués automatiquement.

Demande de brevet : X

Demande de CU :

<b>DATE DE RECEPTION</b>	29 juillet 2003	
<b>TYPE DE DEPOT</b>	INPI (PARIS) - Dépôt électronique	<b>Dépôt en ligne: X</b>
<b>N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL ATTRIBUE PAR L'INPI</b>	0350379	<b>Dépôt sur support CD:</b>
<b>Vos références pour ce dossier</b>	B14302-3 FG DD2477	

#### DEMANDEUR

Nom ou dénomination sociale	COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE
Nombre de demandeur(s)	2
Pays	FR

#### TITRE DE L'INVENTION

STRUCTURES POREUSES UTILISABLES EN TANT QUE PLAQUES BIPOLAIRES ET PROCEDES DE PREPARATION DE TELLES STRUCTURES POREUSES.

#### DOCUMENTS ENVOYES

package-data.xml	Requetefr.PDF	fee-sheet.xml
Design.PDF	ValidLog.PDF	textebrevet.pdf
FR-office-specfic-info.xml	application-body.xml	request.xml
dessins.pdf	Indication-bio-deposit.xml	

#### EFFECTUE PAR

Effectué par:	J.Lehu
Date et heure de réception électronique:	29 juillet 2003 14:07:38
Empreinte officielle du dépôt	9C:E6:3E:7D:7F:91:8A:41:43:B9:DB:FB:BE:08:69:7C:FF:E3:CE:44

/ INPI PARIS, Section Dépôt /

SIEGE SOCIAL  
INSTITUT 26 bis, rue de Saint Petersburg  
NATIONAL DE 75800 PARIS cedex 08  
LA PROPRIETE Téléphone : 01 53 04 53 04  
INDUSTRIELLE Télécopie : 01 42 93 69 30

**STRUCTURES POREUSES UTILISABLES EN TANT QUE PLAQUES  
BIPOLAIRES ET PROCÉDÉS DE PRÉPARATION DE TELLES  
STRUCTURES POREUSES.**

5

**DESCRIPTION**

**DOMAINE TECHNIQUE**

La présente invention a trait à des structures poreuses, pouvant être utilisées notamment en tant que plaques bipolaires ou ensemble plaque  
10 bipolaire/électrode dans des dispositifs de pile à combustible.

L'invention concerne également un procédé de fabrication de telles structures poreuses.

Le domaine général de l'invention peut être  
15 défini comme celui des piles à combustible, en particulier des piles à combustible du type à électrolyte polymère solide.

**ETAT DE LA TECHNIQUE ANTERIEURE**

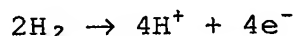
Une pile à combustible est un ensemble  
20 comportant généralement une pluralité de cellules élémentaires empilées les unes sur les autres. Dans chacune des cellules élémentaires de la pile à combustible, une réaction électrochimique se crée entre deux réactifs qui sont introduits de manière continue  
25 dans les cellules élémentaires. Le combustible habituellement utilisé est l'hydrogène ou le méthanol, suivant que l'on se trouve respectivement en présence d'une pile fonctionnant avec des mélanges du type hydrogène/oxygène (pile du type PEMFC) et en présence

d'une pile fonctionnant avec des mélanges du type méthanol/oxygène (pile du type DMFC).

Le combustible est amené au contact de l'anode tandis que le comburant, en l'occurrence  
5 l'oxygène, est amené au contact de la cathode.

La cathode et l'anode sont séparées par un électrolyte du type membrane échangeuse d'ions.

Au niveau de l'anode, il se produit une réaction d'oxydation du combustible, par exemple  
10 l'hydrogène, représentée par l'équation suivante :



Au niveau de la cathode, il se produit une réaction de réduction de l'oxydant, en général l'oxygène, représentée par l'équation suivante:



On assiste alors à une réaction électrochimique dont l'énergie créée est convertie en énergie électrique. Des protons  $\text{H}^+$  circulent de l'anode en direction de la cathode en traversant l'électrolyte.  
20 Des électrons produits à l'anode sont acheminés vers la cathode par un circuit extérieur afin de concourir à la production d'énergie électrique.

Dans un même temps, au niveau de la cathode, on assiste à une production d'eau qui est  
25 évacuée de l'ensemble électrode-membrane-électrode.

Dans les piles à combustible de l'art antérieur, plusieurs ensembles électrode-membrane-électrode sont empilés les uns sur les autres, afin d'obtenir une puissance supérieure à celle fournie par  
30 un seul de ces ensembles. La jonction et la continuité électrique entre ces ensembles s'effectuent

généralement à l'aide de plaques conductrices, ces plaques étant également appelées plaques bipolaires.

C'est donc à l'aide de ces plaques bipolaires, que l'on peut joindre la cathode d'un ensemble avec l'anode d'un ensemble adjacent. Ces plaques bipolaires permettent en outre d'assurer les plus grandes conductivités électriques possibles, de manière à éviter les chutes ohmiques préjudiciables au rendement de la pile à combustible.

Les plaques bipolaires doivent également remplir d'autres fonctions que celle d'assurer la jonction électrique.

En effet, on doit par exemple procéder, par l'intermédiaire de ces plaques bipolaires, à l'alimentation continue en réactifs de l'anode d'un premier ensemble, et de la cathode d'un second ensemble adjacent, les plaques bipolaires remplissant, à ce moment là, le rôle de distributeur de réactifs.

De plus, les plaques bipolaires servent aussi à l'évacuation des produits au niveau de la cathode, en intégrant des éléments d'élimination de l'eau en excès.

Les plaques bipolaires peuvent en outre incorporer un échangeur thermique servant à contrer toute surchauffe au sein de l'empilement d'ensembles électrode-membrane-électrode.

Notons enfin qu'une autre fonction de ces plaques bipolaires peut résider dans la tenue mécanique des ensembles électrode-membrane-électrode, notamment lorsque ces derniers sont empilés les uns sur les autres. Un tel assemblage assure un volume global de la

pile de faible épaisseur, ce qui est tout à fait compatible avec les applications prévues, comme par exemple celle concernant un véhicule électrique.

Dans l'art antérieur, il existe différentes configurations de plaques bipolaires, pour réaliser la distribution des réactifs.

On note tout d'abord une configuration selon laquelle des canaux sont usinés sur au moins une face des plaques bipolaires. Ces canaux sont prévus pour assurer une distribution la plus homogène possible des réactifs sur une surface de l'électrode avec laquelle ils sont en contact.

Ces canaux sont habituellement organisés de sorte que les réactifs injectés dans ces canaux serpentent sur une grande partie de la surface de l'électrode. Les moyens mis en œuvre pour obtenir un tel résultat sont des tronçons horizontaux espacés par des coudes descendant à 180°. Notons que ces tronçons sont également susceptibles de récupérer et d'évacuer l'eau produite au niveau de la cathode.

Cependant, il a été constaté que cet agencement particulier de moyens ne permettait pas d'obtenir une surface d'échange suffisamment importante pour aboutir à un rendement de conversion électrochimique acceptable en vue d'une application industrielle.

Pour pallier cet inconvénient, une autre configuration a été proposée dans l'art antérieur.

Il s'agit selon cette configuration d'utiliser une mousse métallique à forte porosité à adjoindre aux pièces métalliques dans lesquelles sont



pratiqués des usinages, cette mousse métallique permettant d'assurer une bonne distribution des réactifs ainsi que l'évacuation des différents produits.

5 Néanmoins, le fait d'adjoindre une mousse métallique au niveau de la plaque bipolaire contribue à créer une résistance importante, ce qui entraîne une diminution de la conduction électrique au sein de l'ensemble.

10 Même si le problème afférent à la conduction électrique peut être partiellement résolu en compressant la mousse métallique, il s'avère en tout état de cause que des problèmes de corrosion persistent, du fait de la nature chimique très  
15 agressive de l'environnement de ce type de pile à combustible, même en utilisant des revêtements inoxydables, et notamment en raison de la présence de nombreux défauts comme des ruptures de brins au sein de la mousse métallique.

20 Ainsi, les structures, utilisées en tant que plaques bipolaires dans l'art antérieur, présentent toutes l'un ou plusieurs inconvénients suivants :

- elles ne permettent pas une distribution efficace des réactifs, du fait d'une surface d'échange  
25 insuffisante entre la structure et l'élément à alimenter en fluide ;

- elles engendrent, par le fait qu'elles peuvent être constituées de plusieurs pièces éventuellement en matériaux différents, une résistance  
30 de contact et des problèmes de corrosion.

**EXPOSÉ DE L'INVENTION**

Le but de la présente invention est donc de proposer une structure poreuse utilisable notamment pour constituer des plaques bipolaires ainsi que des ensembles plaque bipolaire/électrode, ladite structure remédiant aux inconvénients de l'art antérieur précité.

Le but de l'invention est également de proposer un procédé de fabrication de telles structures poreuses.

10

Ainsi, selon un premier objet, la présente invention a trait à une structure poreuse comprenant une matrice poreuse en tissu de carbone, ladite matrice poreuse étant délimitée au niveau d'une au moins de ses faces par une couche étanche en un élément choisi parmi les fibres de carbone, les nanotubes de carbone, ladite couche étanche étant liée à la matrice poreuse par des liaisons carbone-carbone.

Une telle structure poreuse présente les avantages suivants :

- du fait qu'elle soit constituée uniquement de carbone, cette structure présente une continuité électrique, une bonne conductivité ainsi qu'une grande inertie chimique, que ne présentent pas les structures poreuses de l'art antérieur ;

- du fait que les parties de cette structure (matrice et couche étanche) ne sont plus uniquement liées par liaison mécanique mais par des liaisons carbone-carbone, cette structure, lorsqu'elle sera dédiée à la circulation de fluide, ne connaîtra pas de problème de fuite de fluide ; et

30

- pour les mêmes raisons que celles mentionnées ci-dessus, lorsqu'elle sera dédiée à la conduction électrique, la structure poreuse de l'invention ne présentera pas de chute de potentiel, dans la mesure où la résistance de contact inhérente aux structures de l'art antérieur n'existe plus, du fait que les différents éléments constitutifs de la structure poreuse de l'invention sont constitués du même matériau (le carbone) et sont liés par des liaisons carbone-carbone ;

- enfin, le fait de n'utiliser que des éléments de carbone tels qu'explicités ci-dessus pour constituer la structure poreuse permet de limiter l'encombrement et la masse de celle-ci.

15

Selon un second objet, la présente invention a trait à un procédé de fabrication d'une structure poreuse telle que définie précédemment, ledit procédé comprenant une étape de réalisation de ladite ou desdites couche(s) étanche(s) par croissance d'éléments de carbone choisis parmi les fibres de carbon, les nanotubes de carbone, sur une face ou deux faces opposées d'une matrice en tissu de carbone suivie d'une densification desdits éléments de carbone.

20

Ainsi, le procédé de l'invention présente les avantages suivants :

- il apporte une simplification dans la conception des zones poreuses, dans la mesure, où contrairement aux procédés de l'art antérieur, de telles zones poreuses ne sont plus conçues par superposition de matériaux de natures différentes ;

30

- permet un contrôle de la porosité des différentes parties constitutives de la zone poreuse ;

- il permet, grâce aux matériaux utilisés tous à base de carbone, d'obtenir une zone présentant  
5 une excellente stabilité chimique, électrochimique et thermique ;

- il met en œuvre des étapes pouvant être réalisées dans une ligne de production continue.

10 D'autres avantages et caractéristiques de l'invention apparaîtront dans la description non limitative détaillée ci-dessous.

#### BRÈVE DESCRIPTION DES DESSINS

15 Les figures 1 à 6 sont des vues en coupe de différentes structures poreuses conformes à l'invention.

#### EXPOSÉ DÉTAILLÉ DE MODES DE RÉALISATION PARTICULIERS

20 Comme mentionné précédemment, l'invention a trait à des structures poreuses pouvant être utilisées en tant que plaque bipolaire et/ou en tant qu'ensemble plaque bipolaire/électrode.

Ainsi, les structures poreuses sont  
25 constituées d'une matrice poreuse en tissu de carbone, ladite matrice poreuse étant délimitée au niveau d'une au moins de ses faces par une couche étanche en un élément choisi parmi les fibres de carbone, les nanotubes de carbone, ladite couche étanche étant liée  
30 à la matrice poreuse par des liaisons carbone-carbone.

On précise que, selon l'invention, la structure poreuse présente globalement une porosité ouverte.

On précise que, par matrice poreuse en tissu de carbone, on entend, dans ce qui précède et ce qui suit, une pièce souple constituée d'un enchevêtrement de fils en fibres de carbone, le degré d'enchevêtrement étant fonction de la porosité souhaitée.

La matrice poreuse est délimitée sur au moins l'une des ses faces par une couche étanche, c'est-à-dire une couche imperméable aux gaz et aux liquides. Cette couche étanche présente la particularité d'être réalisée en un élément de carbone choisi parmi les fibres de carbone, les nanotubes de carbone et de ne pas être associée à la matrice poreuse par une liaison mécanique mais par des liaisons carbone-carbone.

De ce fait, la structure poreuse constitue une pièce ne présentant pas, telle que cela est le cas des structures poreuses de l'art antérieur, une résistance de contact, responsable notamment, lorsque les structures poreuses sont utilisées en tant que plaque bipolaire, d'une chute de potentiel.

Selon l'utilisation envisagée des structures poreuses de l'invention, celles-ci peuvent se présenter sous différentes configurations.

Ainsi, selon un premier mode de réalisation, représentée notamment par la figure 1, la structure poreuse 1 comporte une matrice poreuse 3 en tissu de carbone délimitée au niveau d'une première

face 5 par une couche étanche 7, présentant les caractéristiques précédemment mentionnées et au niveau d'une deuxième face 9 opposée à la première face par une couche poreuse 11 en fibres de carbone, ladite  
5 couche poreuse 11 étant liée par des liaisons carbone-carbone à la matrice poreuse 3. Il est entendu que la couche poreuse présentera une porosité prédéterminée en fonction de l'usage dédié à cette couche.

Selon un second mode de réalisation,  
10 représentée par la figure 2, la structure poreuse 13 comporte une matrice poreuse 15 délimitée au niveau d'une première face 17 par une couche étanche 19 et au niveau d'une seconde face 21 opposée à la première face par une autre couche étanche 23, lesdites couches  
15 étanches 19, 23 étant telles que définies précédemment.

Les structures poreuses de l'invention peuvent comprendre également une couche poreuse en fibres de carbone sur le ou les couches étanches susmentionnées et/ou sur une face de la matrice  
20 poreuse, telles que cela est notamment représenté sur les figures 3 et 4.

Ainsi, la figure 3 représente une structure poreuse 25 comprenant une matrice poreuse 27, délimitée sur une face 30 par une couche étanche 29 et sur la face opposée 32 par une couche poreuse 31 telle que  
25 représentée sur la figure 1, et en plus une autre couche poreuse 33 sur ladite couche étanche 29.

La figure 4, quant à elle, représente une structure poreuse 35 comprenant une matrice poreuse 37  
30 délimitée sur deux faces opposées 40, 42 par deux couches étanches 39, 41 de part et d'autre de ladite

matrice poreuse 37, sur lesquelles sont fixées par liaison carbone-carbone deux couches poreuses 43, 45.

On note que, selon l'un quelconque des modes de réalisation, les structures poreuses peuvent  
5 comprendre une couche active (référéncée respectivement 12 sur les figures 1, 5 et 6) déposée sur les couches poreuses susmentionnées.

Il est entendu que les différentes  
10 structures simples décrites ci-dessus peuvent être associées pour fournir des structures plus complexes.

Ainsi, la figure 5 correspond à une structure poreuse complexe résultant de l'association par leurs couches étanches 7 de deux structures  
15 poreuses 13 telles que représentés sur la figure 1.

La figure 6 correspond à une structure poreuse complexe résultant de l'association par leurs couches étanches (7, 19, 23) d'une structure poreuse 13  
20 conforme à la figure 2 avec deux structures poreuses 1 conformes à la figure 1.

Les structures poreuses de l'invention peuvent être utilisées en tant que plaque bipolaire  
25 et/ou en tant qu'ensemble plaque bipolaire/électrode. Les structures poreuses de l'invention peuvent être également utilisées dans des échangeurs thermiques.

On rappellera qu'une plaque bipolaire est une pièce assurant la séparation physique entre deux  
30 électrodes de polarité opposée de deux cellules de pile adjacente, tout en assurant la continuité électrique.

Une plaque bipolaire peut assurer, en plus de son rôle de séparation, un rôle dans la distribution des réactifs adéquats (à savoir combustible ou comburant) aux électrodes susmentionnées.

5                   Un ensemble plaque bipolaire/électrode est un ensemble résultant de l'association d'une plaque bipolaire telle que définie précédemment avec au moins une partie d'une électrode, c'est-à-dire la zone de diffusion des réactifs (pouvant correspondre aux  
10 couches poreuses précédemment mentionnées) et éventuellement la zone active (pouvant correspondre à la couche active susmentionnée). On précise que, par couche active, on entend selon l'invention une couche comprenant au moins un catalyseur apte à catalyser la  
15 réaction électrochimique adéquate à l'électrode concernée.

Ainsi, en particulier les structures poreuses représentées sur les figures 1, 4, 5 et 6 peuvent être utilisées en tant que plaques bipolaires  
20 et/ou ensemble électrode/plaque bipolaire.

Ainsi, la structure représentée sur la figure 1 peut correspondre à un ensemble électrode/plaque bipolaire situé en fin d'empilement, lorsque ledit ensemble est destiné à être incorporé  
25 dans une pile constituée d'un empilement de cellules élémentaires. Dans ce cas, la couche étanche 7 et la matrice poreuse 3 correspondent à une demi-plaque, dans la mesure où elle ne repose que sur une électrode et la couche poreuse 11 correspond à la zone de diffusion des  
30 réactifs de l'électrode et la couche catalytique 12 correspond à la zone active de l'électrode.



La structure représentée sur la figure 4 peut correspondre à une plaque bipolaire comprenant un circuit de refroidissement, dans laquelle :

- la matrice poreuse 37 correspond à la zone de circulation du liquide de refroidissement ;
- les couches poreuses 43, 45 correspondent aux zones de distribution des réactifs ;
- les couches étanches 39, 41 assurent une séparation entre la zone de circulation du liquide de refroidissement et les zones de distribution des réactifs.

La structure poreuse représentée sur la figure 5 peut correspondre à un ensemble électrode/plaque bipolaire ne comprenant pas de circuit de refroidissement, dans lequel :

- les matrices poreuses 3 correspondent à la zone de distribution des réactifs ;
- les couches poreuses 11 correspondent à la zone de diffusion des électrodes appartenant à deux cellules adjacentes ;
- les couches actives 12 correspondent à la zone active des électrodes appartenant à deux cellules adjacentes ;
- les couches étanches 7 assurant la séparation entre les deux zones de distribution des réactifs.

La structure représentée sur la figure 6 peut correspondre à un ensemble électrode/plaque bipolaire comprenant un circuit de refroidissement, dans lequel :

- la matrice poreuse 15 correspond à la zone de circulation du liquide de refroidissement et les matrices poreuses 3 correspondent aux deux zones de distribution des réactifs ;

5                   - les couches poreuses 11 correspondent aux zones de diffusion des électrodes appartenant à deux cellules adjacentes ;

                  - les couches actives 12 correspondent à la zone active des électrodes appartenant à deux cellules  
10 adjacentes ;

                  - les couches étanches 7, 19, 23 assurant la séparation entre la zone de circulation du liquide de refroidissement et les deux zones de distribution des réactifs.

15

La structure représentée par la figure 2 peut correspondre à une plaque bipolaire dans laquelle :

                  - la matrice poreuse 15 correspond à une  
20 zone de circulation d'un fluide de refroidissement ;

                  - les couches étanches 19 et 23 peuvent assurer la séparation entre deux électrodes de deux cellules de pile adjacentes.

25                   Enfin, la structure représentée par la figure 3 peut correspondre à un ensemble électrode/plaque bipolaire dépourvu de circuit de refroidissement dans lequel :

                  - la matrice poreuse 27 et la couche  
30 poreuse 31 correspondent à une zone de distribution de réactifs ;

- la couche poreuse 33 correspond à une zone de distribution de réactifs distincte de la zone de distribution précédemment mentionnée ;

- la couche étanche 29 assure la séparation  
5 entre les deux zones de distribution susmentionnées.

Pour les différents cas de figure explicités ci-dessus, il est entendu que la porosité, au sein d'une même couche poreuse peut être variable,  
10 selon l'usage de cette couche poreuse. La porosité entre deux couches poreuses distinctes peut être également différente selon que ces couches poreuses sont dédiées à la distribution de gaz (tel que  $O_2$ ) et à la distribution de liquide (tel que le méthanol).

15

Comme mentionné précédemment, l'invention se rapporte à un procédé de fabrication d'une telle structure poreuse telle que définie précédemment, ledit procédé comprend une étape de réalisation de ladite ou  
20 desdites couche(s) étanche(s) par croissance d'éléments de carbone sur une face ou deux faces opposées d'une matrice en tissu de carbone suivie d'une densification desdits éléments de carbone.

25

Selon l'invention, on précise que l'on entend par matrice en tissu de carbone une pièce résultant de l'enchevêtrement de fibres de carbone, l'enchevêtrement étant plus ou moins dense selon la porosité souhaitée.

30

Les matrices en tissu de carbone peuvent être disponibles dans le commerce ou peuvent être

préparées préalablement par exemple par aiguilletage de fibres de carbone. On précise que la technique d'aiguilletage consiste à enchevêtrer mécaniquement des fibres à l'intérieur d'un voile, à l'aide d'une  
5 aiguilleteuse, l'enchevêtrement pouvant être réglé en fonction de la porosité recherchée.

L'étape de réalisation de la ou les couches étanches consiste à réaliser ces couches étanches, de  
10 manière à ce qu'elles soient ancrées, en tout ou partie dans le tissu de carbone, plus précisément dans les pores constitutifs du tissu de carbone par le biais de liaison carbone-carbone. L'on obtient ainsi une zone poreuse (constituée par la structure du tissu de  
15 carbone) limitée sur au moins une de ses faces par une couche étanche, qui interpénètre les pores dudit tissu, la pièce résultante étant ainsi une pièce « monobloc », c'est-à-dire une pièce ne résultant de l'adjonction de plusieurs pièces réunis, par exemple, par soudage et ne  
20 présentant pas les inconvénients inhérents à ce type de pièces, telles que cela a été mentionné plus haut.

Ainsi, une telle structure peut être obtenue par croissance d'éléments de carbone sur au moins une des faces d'une matrice en tissu de carbone  
25 suivie d'une densification desdits éléments de carbone. On précise que, par éléments de carbone, on entend, de préférence, selon l'invention, des fibres de carbone, des nanotubes de carbone.

Lorsque les éléments de carbone sont des  
30 fibres de carbone, l'étape de croissance desdites fibres de carbone peut consister à pyrolyser des fibres

précurseurs des fibres de carbones, lesdites fibres pouvant être des fibres polymères telles que des fibres de polyacrylonitrile (PAN), des fibres obtenus à partir de brai, l'étape de pyrolyse étant précédée des étapes  
5 suivantes :

- une étape d'imprégnation de la face adéquate de la matrice en tissu de carbone par des monomères adéquats ou du brai de pétrole ;
- dans le cas où les fibres précurseurs  
10 sont des fibres polymères, une étape de polymérisation desdits monomères suivi d'un filage, pour obtenir les fibres polymères adéquats ;
- dans le cas où les fibres précurseurs sont des fibres de brai, une étape de filage de manière  
15 à obtenir des fibres de brai.

Il est entendu que le filage se fera de manière à obtenir un réseau de fibres suffisamment enchevêtrées afin, qu'à l'issue de la pyrolyse, la couche résultante soit une couche étanche.

20 Lorsque la structure poreuse de l'invention comporte une ou plusieurs couches poreuses délimitant la matrice en tissu ou déposée(s) sur les couches étanches, la ou lesdites couches poreuses peuvent être obtenir par croissance d'éléments de carbone, telles  
25 que les fibres de carbone et les nanotubes de carbone, la croissance étant réglée de manière à obtenir à l'issue de cette croissance une couche présentant la porosité souhaitée.

Lorsque la structure poreuse comporte  
30 également une couche active à base de catalyseur, cette dernière peut être obtenue par des techniques

classiquement employées dans la fabrication des couches actives, telles que l'enduction par ou la pulvérisation par des suspensions comprenant le catalyseur adéquat. De telles suspensions peuvent être une suspension de  
5 carbone platiné.

Ainsi, grâce à leurs caractéristiques susmentionnées, les structures poreuses de l'invention grâce à la présence de différentes zones à porosité  
10 déterminée, trouvent leurs applications dans le domaine des piles à combustible de type PEMFC ou DMFC fonctionnant à basse température et des piles fonctionnant à température intermédiaire (tels que les piles à acide phosphorique fonctionnant à 250°C) en  
15 tant que plaques bipolaires mais également dans le domaine des échangeurs thermiques.

## REVENDICATIONS

1. Structure poreuse comprenant une matrice poreuse (3, 15, 27, 37) en tissu de carbone, ladite matrice poreuse étant délimitée au niveau d'une au moins de ses faces (5, 17, 21, 30, 40, 42) par une couche étanche (7, 19, 23, 29, 39, 41) en un élément choisi parmi les fibres de carbone, les nanotubes de carbone, ladite couche étanche étant liée à la matrice poreuse par des liaisons carbone-carbone.

10

2. Structure poreuse selon la revendication 1, dans laquelle ladite matrice poreuse (3) est délimitée au niveau d'une première face (5) par une couche étanche (7), telle que définie dans la revendication 1 et au niveau d'une deuxième face (9) opposée à la première face par une couche poreuse (11) en fibres de carbone, ladite couche poreuse étant liée par des liaisons carbone-carbone à la matrice poreuse.

20

3. Structure poreuse selon la revendication 1, dans laquelle ladite matrice poreuse (15) est délimitée au niveau d'une première face (17) par une couche étanche (19) et au niveau d'une seconde face (21) opposée à la première face par une autre couche étanche (23), lesdites couches étanches étant telles que définies dans la revendication 1.

25

4. Structure poreuse selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, comprenant en outre sur le ou lesdites couches étanches (29, 39, 41) et/ou sur une

30

face (32) de la matrice (27) une couche poreuse (31, 33, 43, 45) en fibres de carbone.

5. Structure poreuse selon la revendication  
5 2, caractérisée en ce qu'elle comprend en outre sur ladite ou lesdites couches poreuses une couche active (12).

6. Structure poreuse selon l'une quelconque  
10 des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que ladite structure poreuse est une plaque bipolaire et/ou un ensemble plaque bipolaire-électrode.

7. Procédé de fabrication d'une structure  
15 poreuse selon l'une quelconque des revendications 1 à 6, caractérisé en ce que ledit procédé comprend une étape de réalisation de ladite ou desdites couche(s) étanche(s) par croissance d'éléments de carbone sur une face ou deux faces opposées d'une matrice en tissu de  
20 carbone suivie d'une densification desdits éléments de carbone.

8. Procédé de fabrication selon la  
revendication 7, comprenant une étape de préparation de  
25 ladite matrice en tissu de carbone par aiguilletage de fibres de carbone.



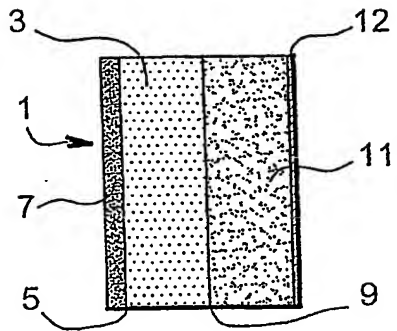


FIG. 1

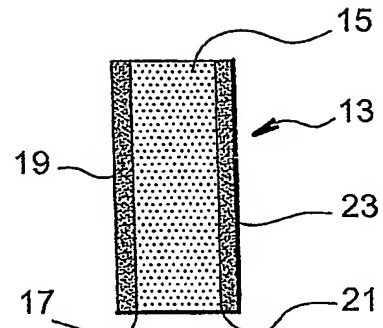


FIG. 2

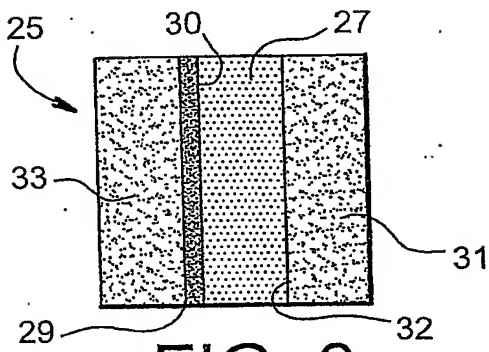


FIG. 3

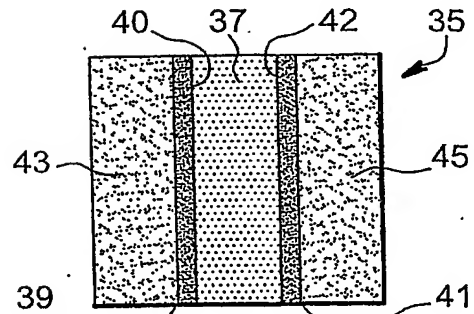


FIG. 4

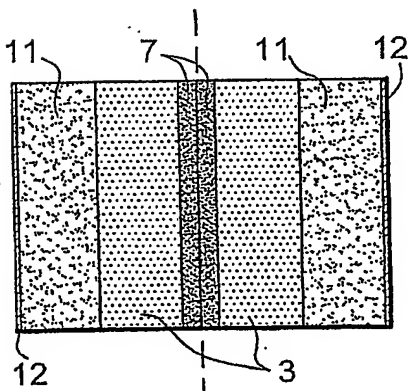


FIG. 5

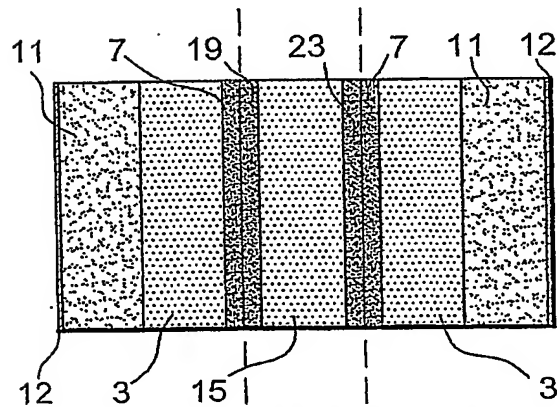
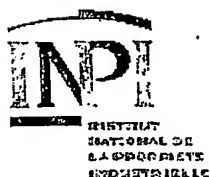


FIG. 6



## BREVET D'INVENTION CERTIFICAT D'UTILITÉ

### Désignation de l'inventeur

Vos références pour ce dossier	B14302-3 FG DD2477
N°D'ENREGISTREMENT NATIONAL	6350 379
TITRE DE L'INVENTION	
	STRUCTURES POREUSES UTILISABLES EN TANT QUE PLAQUES BIPOLAIRES ET PROCEDES DE PREPARATION DE TELLES STRUCTURES POREUSES.
LE(S) DEMANDEUR(S) OU LE(S) MANDATAIRE(S):	
DESIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S):	
Inventeur 1	
Nom	MOSDALE
Prénoms	Renaut
Rue	15, rue du 11 Novembre
Code postal et ville	38640 CLAIX
Société d'appartenance	
Inventeur 2	
Nom	ESCRIBANO
Prénoms	Sylvie
Rue	15, rue Jean Prévost
Code postal et ville	38000 GRENOBLE
Société d'appartenance	
Inventeur 3	
Nom	OLRY
Prénoms	Pierre
Rue	27, rue E. Costedoat
Code postal et ville	33000 BORDEAUX
Société d'appartenance	

La loi n°78-17 du 6 janvier 1978 relative à l'informatique aux fichiers et aux libertés s'applique aux réponses faites à ce formulaire. Elle garantit un droit d'accès et de rectification pour les données vous concernant auprès de l'INPI.

Signé par

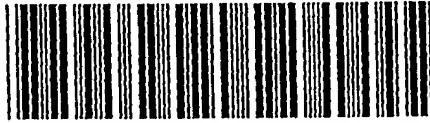
Signataire: FR, Brevatome, J.Lehu

Emetteur du certificat: DE, D-Trust GmbH, D-Trust for EPO 2.0

Fonction

Mandataire agréé (Mandataire 1)

PCT/FR2004/050362



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**